

L2 ANSWER 1 OF 4 CAPLUS COPYRIGHT 2004 ACS on STN

AN 2000:32677 CAPLUS

DN 132:100243

TI Organic electroluminescent material for EL device

IN Maki, Shinichiro; Onikubo, Shunichi; Tamano, Michiko

PA Toyo Ink Mfg. Co., Ltd., Japan

SO Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 19 pp.

CODEN: JKXXAF

DT Patent

LA Japanese

FAN.CNT 1

PATENT NO.	KIND	DATE	APPLICATION NO.	DATE
PI JP 2000012229	A2	20000114	JP 1998-181772	19980629

PRAI JP 1998-181772

OS MARPAT 132:100243

AB The invention provides an org. luminescent material with high emission intensity and efficiency, presented by phenanthrene substituted by  $(Ar_1Ar_2NAr_3)_n$  [ $Ar_1,2$  = aryl groups;  $Ar_3$  = arylene group;  $n = 1-10$  integer].

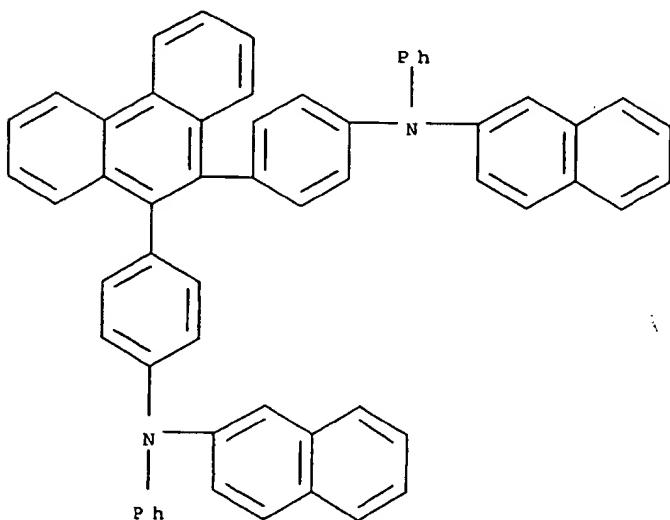
IT \*\*\*254431-31-7\*\*\* \*\*\*254431-32-8\*\*\* \*\*\*254431-33-9\*\*\*

RL: DEV (Device component use); TEM (Technical or engineered material use); USES (Uses)

(org. electroluminescent material for EL device)

RN 254431-31-7 CAPLUS

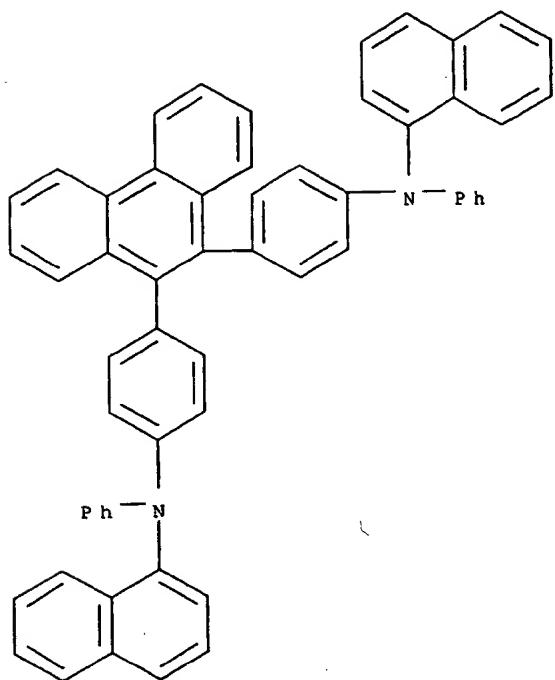
CN 2-Naphthalenamine, N,N'-(9,10-phenanthrenediylid-4,1-phenylene)bis[N-phenyl- (9CI)] (CA INDEX NAME)



RN 254431-32-8 CAPLUS

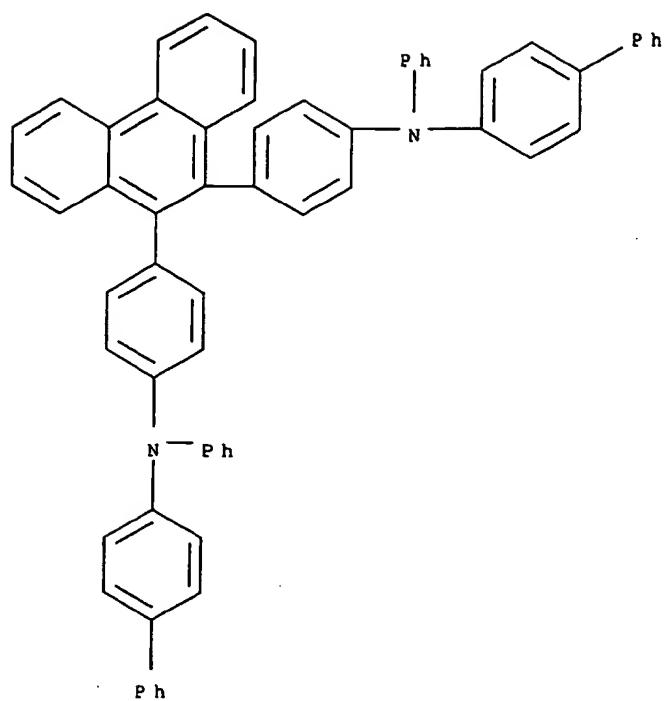
CN 1-Naphthalenamine, N,N'-(9,10-phenanthrenediylid-4,1-phenylene)bis[N-

phenyl- (9CI) (CA INDEX NAME)



RN 254431-33-9 CAPLUS

CN [1,1'-Biphenyl]-4-amine,  
N,N'-(9,10-phenanthrenediyl)-4,1-phenylene)bis[N-  
phenyl- (9CI) (CA INDEX NAME)]



THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19)日本国特許庁 (JP)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2000-12229

(P2000-12229A)

(43)公開日 平成12年1月14日 (2000.1.14)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>  
 H 05 B 33/14  
 C 09 K 11/06  
 I 10 5 B 33/22

識別記号  
 6 2 0

F I  
 H 05 B 33/14  
 C 09 K 11/06  
 H 05 B 33/22

テマコード(参考)  
 B 3 K 0 0 7  
 6 2 0  
 D

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 19 頁)

(21)出願番号

特願平10-181772

(71)出願人 00022218

東洋インキ製造株式会社  
東京都中央区京橋2丁目3番13号

(22)出願日

平成10年6月29日 (1998.6.29)

(72)発明者 真木 伸一郎

東京都中央区京橋2丁目3番13号 東洋インキ製造株式会社内

(72)発明者 鬼久保 俊一

東京都中央区京橋2丁目3番13号 東洋インキ製造株式会社内

(72)発明者 玉野 美智子

東京都中央区京橋2丁目3番13号 東洋インキ製造株式会社内

F ターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB06 AB11 CA01  
CB01 DA01 DB03 EB00 FA01

(54)【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子材料およびそれを使用した有機エレクトロルミネッセンス素子

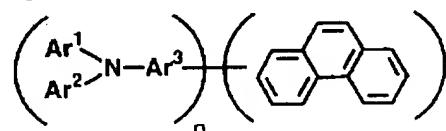
(55)【要約】

【課題】 高輝度・高発光効率、発光劣化が少なく信頼性の高いエレクトロルミネッセンス素子材料、および有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【解決手段】 下記一般式 [1] からなる有機エレクトロルミネッセンス素子材料およびそれを使用した有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式 [1]

【化1】



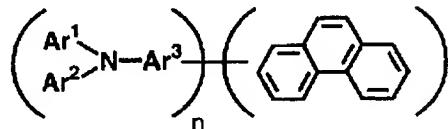
【ただし、式中 Ar<sup>1</sup> および Ar<sup>3</sup> は置換もしくは未置換のアリール基を表し、Ar<sup>2</sup> は置換もしくは未置換のアリーレン基を表す。また、n は 1 から 10 までの整数を表す。】

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】下記一般式[1]で示される有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

一般式[1]

【化1】



【ただし、式中 Ar<sup>1</sup> および Ar<sup>2</sup> は置換もしくは未置換のアリール基を表し、Ar<sup>3</sup> は置換もしくは未置換のアリーレン基を表す。また、n は 1 から 10 までの整数を表す。】

【請求項2】 n が 1 から 4 までの整数である請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【請求項3】 一対の電極間に発光層を含む複数層の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、少なくとも一層が請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層である有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】 一対の電極間に発光層を含む複数層の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層が請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層である有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】 一対の電極間に発光層を含む複数層の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層と陽極との間の正孔注入帯域中の少なくとも一層が請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層である有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は平面光源や表示に使用される有機エレクトロルミネッセンス(EL)素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 有機物質を使用したEL素子は、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子としての用途が有望視され、多くの開発が行われている。一般にELは、発光層および該層をはさんだ一対の対向電極から構成されている。発光は、両電極間に電界が印加されると、陰極側から電子が注入され、陽極側から正孔が注入される。さらに、この電子が発光層において正孔と再結合し、エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーを光として放出する現象である。

【0003】 従来の有機EL素子は、無機EL素子に比べて駆動電圧が高く、発光輝度や発光効率も低かった。

また、特性劣化も著しく実用化には至っていなかった。

近年、10V以下の低電圧で発光する高い蛍光量子効率を持った有機化合物を含有した薄膜を積層した有機EL素子が報告され、関心を集めている(アプライド・フィジクス・レターズ、51巻、913ページ、1987年参照)。この方法では、金属キレート錯体を蛍光体層、アミン系化合物を正孔注入層に使用して、高輝度の緑色発光を得ており、6~7Vの直流電圧で輝度は100cd/m<sup>2</sup>、最大発光効率は1.51m/Wを達成して、実用領域に近い性能を持っている。しかしながら、現在までの有機EL素子は、構成の改善により発光強度は改良されているが、未だ充分な発光輝度は有していない。また、繰り返し使用時の安定性に劣るという大きな問題を持っている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 本発明の目的は、発光効率が高く、繰り返し使用時での安定性の優れた有機EL素子の提供にある。本発明者らが鋭意検討した結果、一般式[1]で示される化合物の有機EL素子材料を少なくとも一層に使用した有機EL素子の発光効率が高く、繰り返し使用時での安定性も優れていることを見いだし本発明に至った。

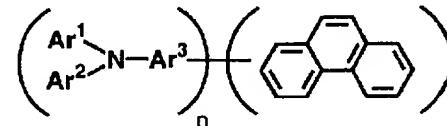
【0005】

【課題を解決するための手段】 即ち、本発明は、下記一般式[1]で示される有機エレクトロルミネッセンス素子材料に関する。

一般式[1]

【0006】

【化2】



【0007】 【ただし、式中 Ar<sup>1</sup> および Ar<sup>2</sup> は置換もしくは未置換のアリール基を表し、Ar<sup>3</sup> は置換もしくは未置換のアリーレン基を表す。また、n は 1 から 10 までの整数を表す。】

また、本発明は n が 1 から 4 までの整数である上記有機エレクトロルミネッセンス素子材料に関する。

【0008】 また、本発明は一対の電極間に発光層を含む複数層の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、少なくとも一層が上記有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層である有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。また、本発明は一対の電極間に発光層を含む複数層の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層が上記有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層である有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

【0009】 また、本発明は一対の電極間に発光層を含

む複数層の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層と陽極との間の正孔注入帯域中の少なくとも一層が上記有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層である有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。である。

## 【0010】

## 【発明実施の形態】

【0011】本発明の一般式[1]で表される化合物のAr<sup>1</sup>およびAr<sup>2</sup>は、置換もしくは未置換のアリール基を表す。置換もしくは未置換のアリール基としては、フェニル基、4-エチルフェニル基、ビフェニル基、4-メチルビフェニル基、4-シクロヘキシルビフェニル基、ターフェニル基、クオーターフェニル基、4-クロロフェニル基、3-ニトロフェニル基、4-シアノフェニル基、4-メトキシフェニル基、3-メチルチオフェニル基、3,5-ジシアノフェニル基、4-トリフルオロメトキシフェニル基、o-, m-, およびp-トリル基、キシリル基、o-, m-, およびp-クメニル基、メシチル基、4-フェノキシフェニル基、4-( $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジメチルベンジル)フェニル基、4-(N, N-ジメチル)アミノフェニル基、4-(N, N-ジフェニル)アミノフェニル基、ペンタレニル基、インデニル基、ナフチル基、5-メチルナフチル基、アズレニル基、ヘプタレニル基、アセナフチレニル基、フェナレニル基、フルオレニル基、アントリル基、アントラキノリル基、3-メチルアントリル基、フェナントリル基、トリフェニレン基、ビレニル基、クリセニル基、2-エチル-1-クリセニル基、ピセニル基、ペリレニル基、6-クロロペリレニル基、ペンタフェニル基、ペンタセニル基、テトラフェニレニル基、ヘキサフェニル基、ヘキサセニル基、ルビセニル基、コロネニル基、トリナフチレニル基、ヘプタフェニル基、ヘプタセニル基、ピラントレニル基、オバレニル基等がある。

【0012】また、本発明の一般式[1]で表される化合物のAr<sup>3</sup>は、置換もしくは未置換のアリーレン基を表す。アリーレン基の具体例としては、Ar<sup>1</sup>およびAr<sup>2</sup>の説明で例示したアリール基に対応するアリーレン基が挙げられる。原料の入手しやすさの点では、フェニレン基、ナフタレン基が好ましい。

【0013】本発明の一般式[1]のnは1から10までの整数であるが、好ましくは1から4、更に好ましくは2から4までの整数である。

【0014】一般式[1]で表される化合物のフェナントレン環、Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>2</sup>およびAr<sup>3</sup>上の水素原子は、他の置換基に置換されても構わない。置換基の種類としては、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは未置換のアルキル基、置換もしくは未置換のアルコキシ基、置換もしくは未置換のアルキルチオ基、置換もしくは未置換のアミノ基、置換もしくは未置換のアルキルアミノ基がある。

【0015】本発明において、一般式[1]で表される化合物は、例えば次のような方法で合成することが出来る。ニトロベンゼン溶媒中、ビス(プロモアリール)フェナントレンと芳香族ジアミン化合物を、炭酸カリウム、銅等の触媒と共に200°Cで50時間反応させることで得られる。

【0016】本発明の化合物の代表例を表1に具体的に例示するが、本発明は以下の代表例に限定されるものではない。

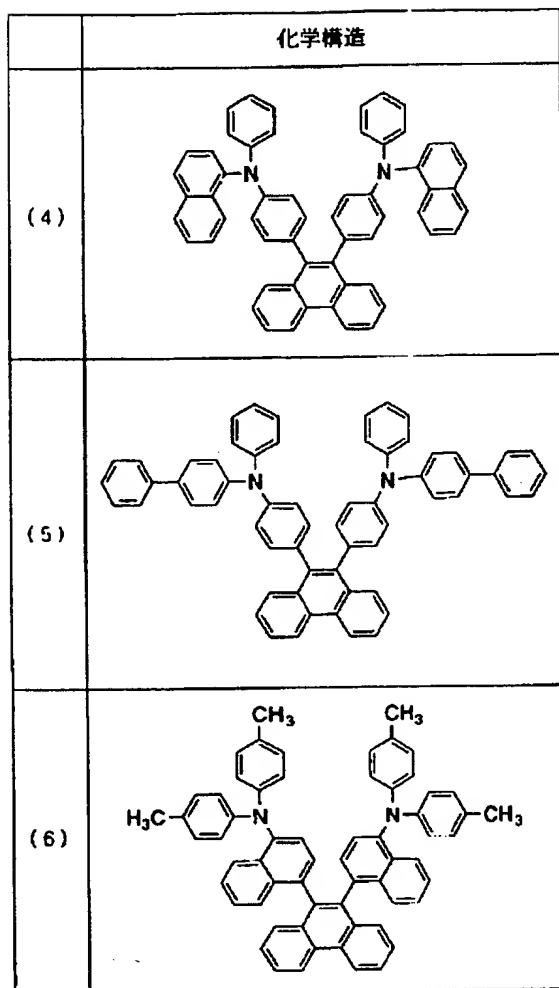
## 【0017】

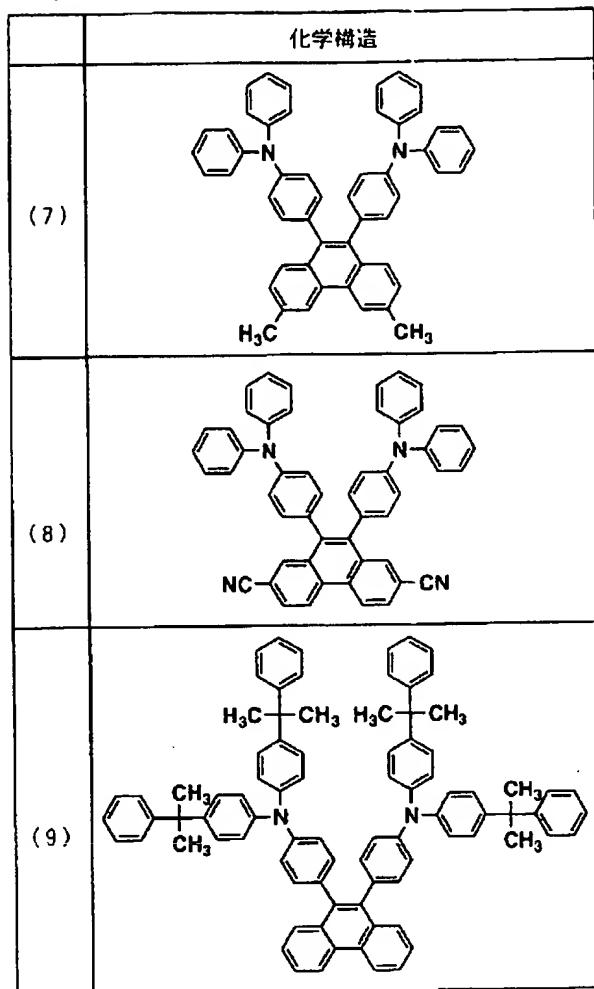
## 【表1】

化学構造	
(1)	
(2)	
(3)	

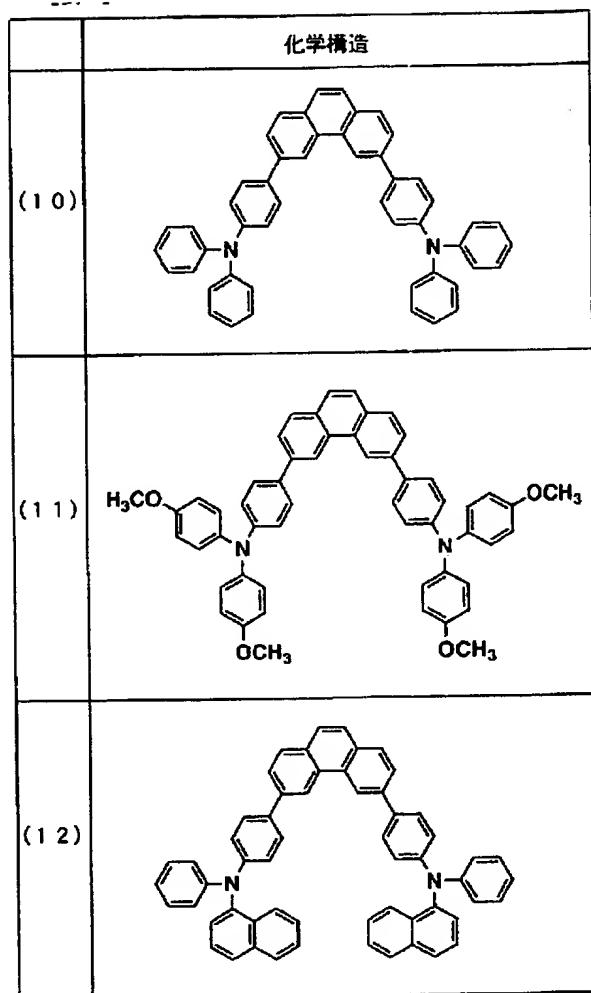
## 【0018】

【0019】

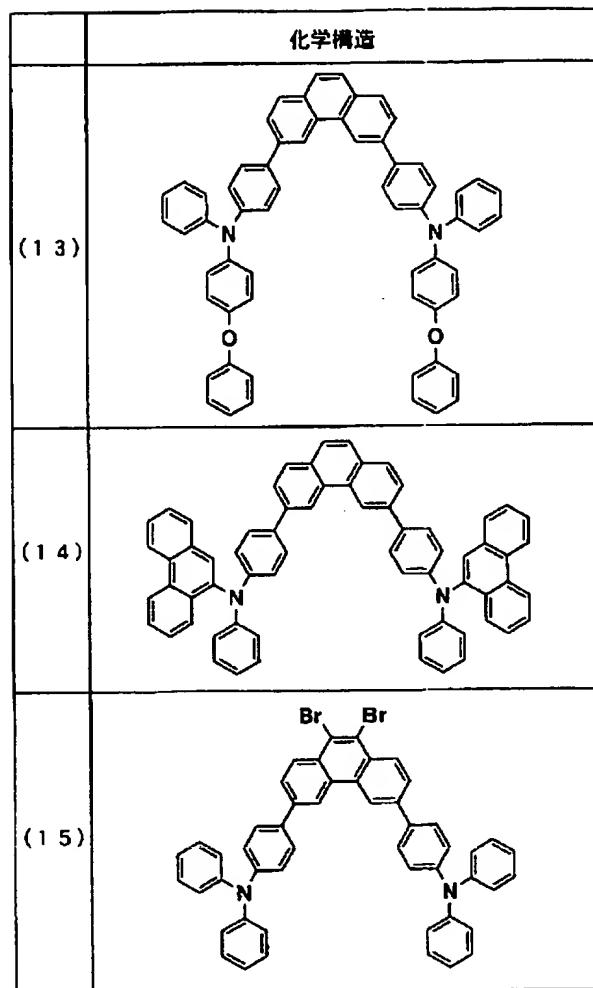




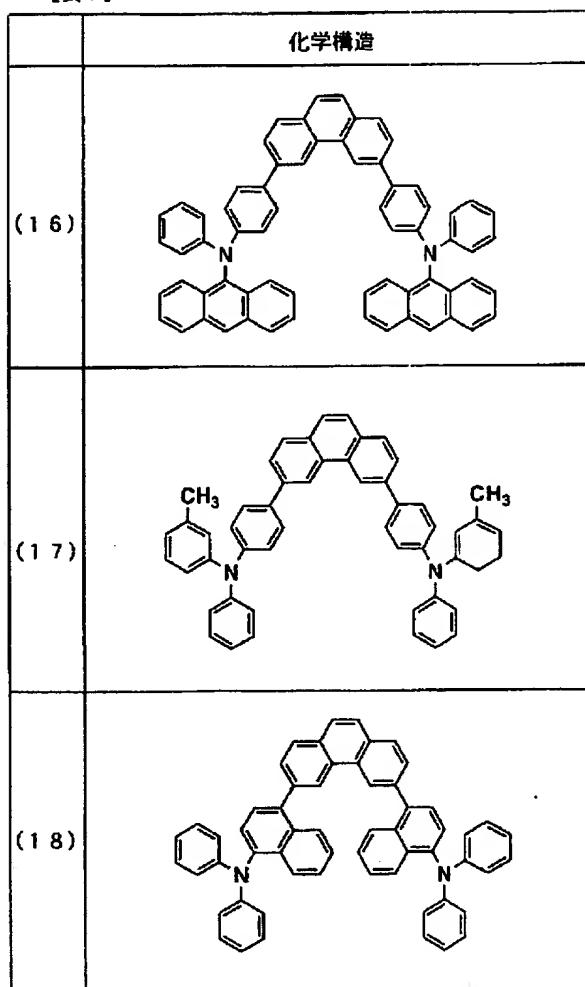
【0020】



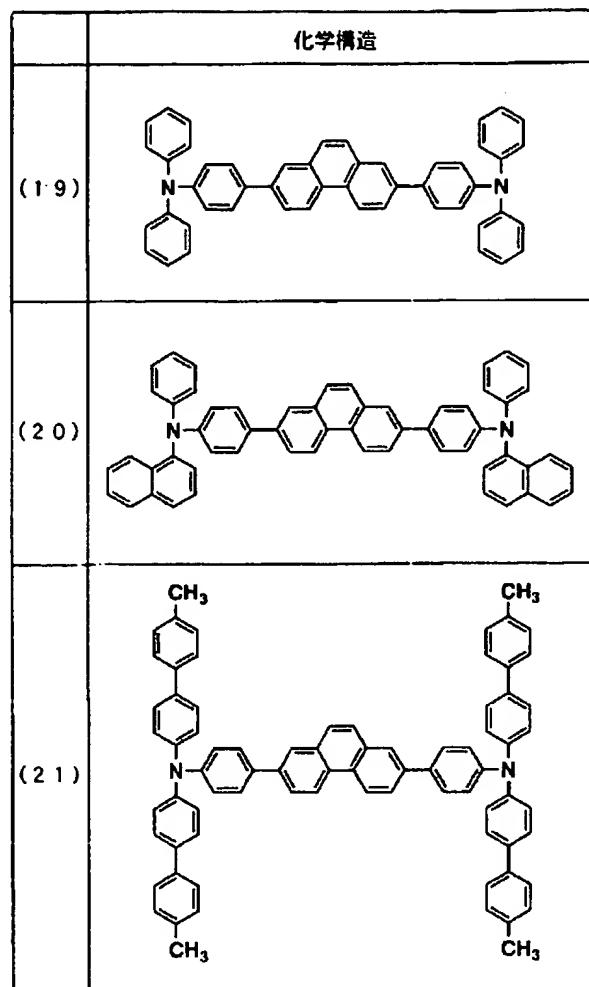
【0021】



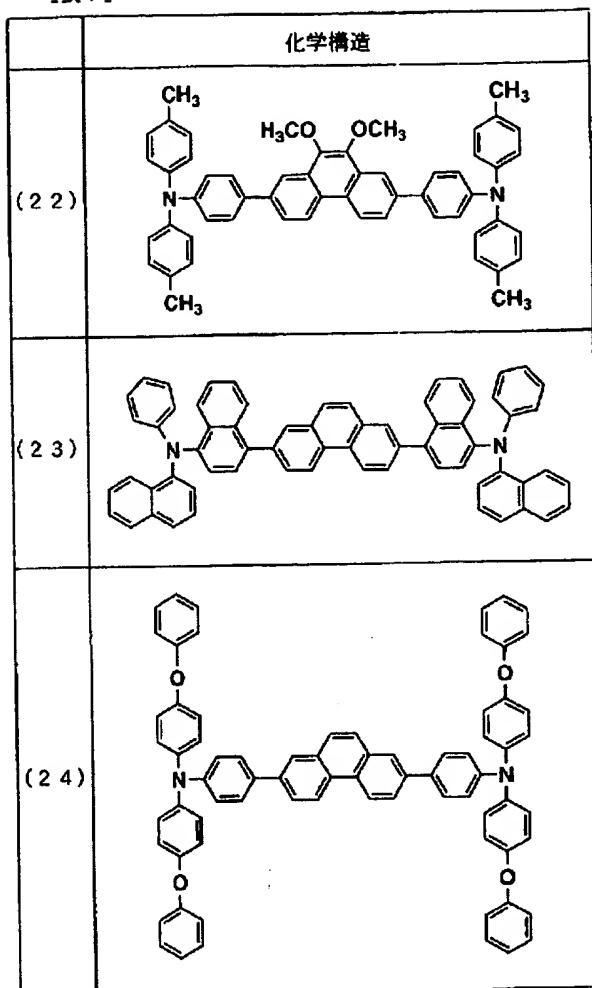
【0022】



【0023】



【0024】



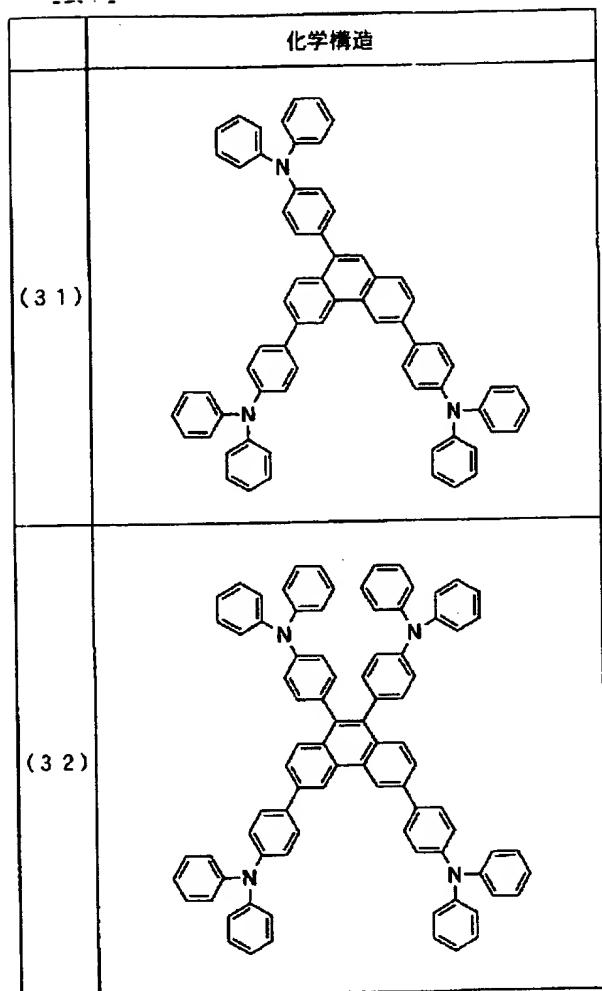
【0025】

化学構造	
(25)	
(26)	
(27)	

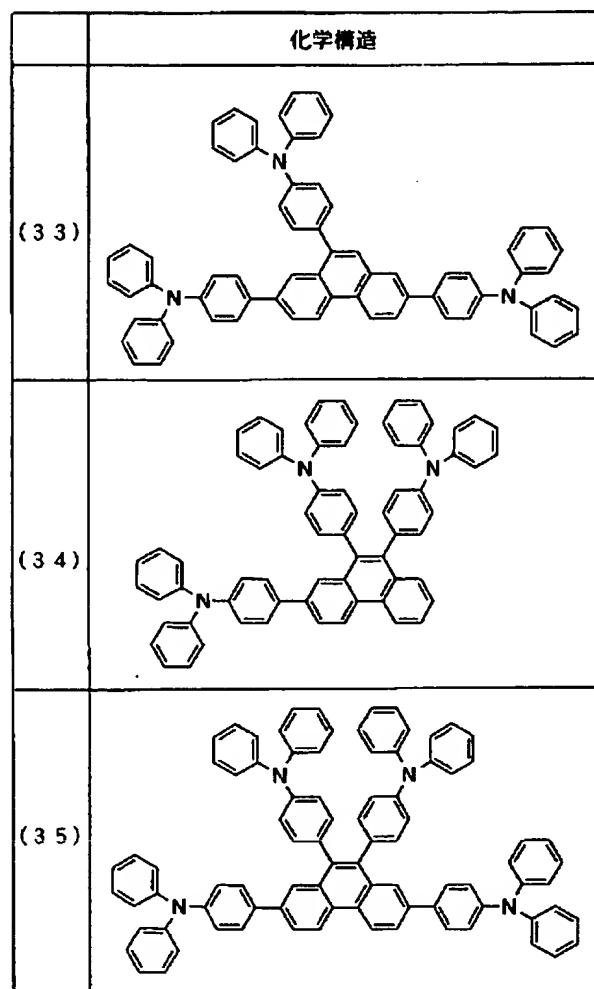
【0026】

化学構造	
(28)	
(29)	
(30)	

【0027】



【0028】



【0029】有機EL素子は、陽極と陰極間に一層もしくは多層の有機化合物薄膜を形成した素子である。一層型の場合、陽極と陰極との間に発光層を設けている。発光層は、発光材料を含有し、それに加えて陽極から注入した正孔もしくは陰極から注入した電子を発光材料まで輸送させるために正孔注入材料、正孔輸送材料もしくは電子注入材料、電子輸送材料を含有しても良い。電子注入材料とは陰極から電子を注入されるうる能力を持つ材料であり、電子輸送材料とは注入された電子を発光層へ輸送する能力を持つ材料である。正孔注入材料とは、陽極から正孔を注入されるうる能力を持つ材料であり、正孔輸送材料とは、注入された正孔を発光層へ輸送する能力を持つ材料である。

【0030】多層型は、(陽極/正孔注入帯域/発光層/陰極)、(陽極/発光層/電子注入帯域/陰極)、(陽極/正孔注入帯域/発光層/電子注入帯域/陰極)の多層構成で積層した有機EL素子がある。

【0031】本発明の一般式[1]で示される化合物は、固体状態において強い蛍光を持つ化合物であり、電界発光性に優れているので、発光材料として発光層内で使用することができる。また、一般式[1]の化合物

は、発光層内においてドーピング材料として発光層中にて最適の割合でドーピングすることにより、高い発光効率および発光波長の最適な選択が可能である。更に、一般式[1]の化合物は、正孔もしくは電子等のキャリアを輸送することができるが、正孔輸送性がより優れているので、正孔注入層として使用することが出来る。正孔注入帯域が二層以上で構成される場合、いずれの正孔注入層にも使用することが出来る。

【0032】発光層のホスト材料に、ドーピング材料(ゲスト材料)として一般式[1]の化合物を使用して、発光輝度が高い有機EL素子を得ることもできる。一般式[1]の化合物は、発光層内において、ホスト材料に対して0.001重量%~50重量%の範囲で含有されていることが望ましく、更には0.01重量%~10重量%の範囲が効果的である。

【0033】一般式[1]の化合物と併せて使用できるホスト材料としては、キノリン金属錯体、オキサジアゾール、ベンゾチアゾール金属錯体、ベンゾオキサゾール金属錯体、ベンゾイミダゾール金属錯体、トリアゾール、イミダゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、スチルベン、ブタジエン、ベンジジン型トリフェニルア

ミン、スチリルアミン型トリフェニルアミン、ジアミン型トリフェニルアミンフルオレノン、ジアミノアントラセン型トリフェニルアミン、ジアミノフェナントレン型トリフェニルアミン、アントラキノジメタン、ジフェノキノン、チアジアゾール、テトラゾール、ペリレンテトラカルボン酸、フレオレニリデンメタン、アントラキノジメタン、トリフェニレン、アントロン等とそれらの誘導体、および、ポリビニルカルバゾール、ポリシラン等の導電性高分子の高分子材料等がある。

【0034】逆に、一般式【1】の化合物をホスト材料として、他のドーピング材料を使用して発光色を変化させることも可能である。一般式【1】と共に使用されるドーピング材料としては、アントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ビレン、テトラセン、コロネン、クリセン、フルオレセイン、ペリレン、フタロペリレン、ナフタロペリレン、ペリノン、フタロペリノン、ナフタロペリノン、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、クマリン、オキサジアゾール、アルダジン、ビスベンゾキサゾリン、ビススチリル、ピラジン、シクロベンタジエン、キノリン金属錯体、アミノキノリン金属錯体、イミン、ジフェニルエチレン、ビニルアントラセン、ジアミノカルバゾール、ピラン、チオピラン、ポリメチル、メロシアニン、イミダゾールキレート化オキソノイド化合物、キナクリドン、ルブレン等およびそれらの誘導体があるが、これらに限定されるものではない。

【0035】発光層には、発光材料およびドーピング材料に加えて、必要があれば正孔注入材料や電子注入材料を使用することもできる。

【0036】有機EL素子は、多層構造にすることにより、クエンチングによる輝度や寿命の低下を防ぐことができる。また、必要があれば、発光材料、ドーピング材料、キャリア注入を行う正孔注入材料や電子注入材料を二種類以上組み合わせて使用することも出来る。また、正孔注入層、発光層、電子注入層は、それぞれ二層以上の層構成により形成されても良く、正孔もしくは電子が効率よく電極から注入され、層中で輸送される素子構造が選択される。

【0037】有機EL素子の陽極に使用される導電性材料は、4eVより大きな仕事関数を持つものが好適であり、炭素、アルミニウム、バナジウム、鉄、コバルト、ニッケル、タンクステン、銀、金、白金、パラジウム等およびそれらの合金、ITO基板、NEA基板と称される酸化スズ、酸化インジウム等の酸化金属、さらにはポリチオフェンやポリピロール等の有機導電性樹脂が用いられる。陰極に使用される導電性材料は、4eVより小さな仕事関数を持つものが好適であり、マグネシウム、カルシウム、錫、鉛、チタニウム、イットリウム、リチウム、ルテニウム、マンガン等およびそれらの合金が用いられる。合金としては、マグネシウム/銀、マグネシウム/インジウム、リチウム/アルミニウム等が代

表例として挙げられるが、これらに限定されるものではない。合金の比率は、加熱の温度、雰囲気、真空中により制御され適切な比率が選択される。陽極および陰極は、必要があれば二層以上の層構成により形成されていても良い。

【0038】有機EL素子では、効率良く発光させるために、少なくとも一方は素子の発光波長領域において充分透明であることが望ましい。また、基板も透明であることが望ましい。透明電極は、上記の導電性材料を使用して、蒸着やスパッタリング等の方法で所定の透光性を確保するように設定する。発光面の電極は、光透過率を10%以上にすることが望ましい。基板は、機械的、熱的強度を有し、透明であれば限定されるものではないが、例示すると、ガラス基板、ポリエチレン板、ポリエーテルサルファン板、ポリプロピレン板等の透明性樹脂があげられる。

【0039】本発明に係わる有機EL素子の各層の形成は、真空蒸着、スパッタリング等の乾式成膜法やスピンコーティング、ディッピング等の湿式成膜法のいずれの方法を適用することができる。膜厚は特に限定されるものではないが、各層は適切な膜厚に設定する必要がある。膜厚が厚すぎると、一定の光出力を得るために大きな印加電圧が必要になり効率が悪くなる。膜厚が薄すぎるとピンホール等が発生して、電界を印加しても充分な発光輝度が得られない。通常の膜厚は5nmから10μmの範囲が適しているが、10nmから0.2μmの範囲がさらに好ましい。

【0040】湿式成膜法の場合、各層を形成する材料を、クロロホルム、テトラヒドロフラン、ジオキサン等の適切な溶媒に溶解または分散して有機化合物薄膜を形成するが、その溶媒はいずれであっても良い。また、いずれの薄膜においても、成膜性向上、膜のピンホール防止等のため適切な樹脂や添加剤を使用しても良い。このような樹脂としては、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル、ポリアミド、ポリウレタン、ポリスルファン、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、セルロース等の絶縁性樹脂、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリシラン等の光導電性樹脂、ポリチオフェン、ポリピロール等の導電性樹脂を挙げることができる。また、添加剤としては、酸化防止剤、紫外線吸収剤、可塑剤等を挙げることができる。

【0041】正孔注入材料としては、正孔を注入する能力を持ち、発光層または発光材料に対して優れた正孔注入効果を有し、発光層で生成した励起子の電子注入層または電子注入材料への移動を防止し、かつ薄膜形成能の優れた化合物が挙げられる。具体的には、フタロシアニン系化合物、ナフタロシアニン系化合物、ポルフィリン系化合物、オキサジアゾール、トリアゾール、イミダゾール、イミダゾロン、イミダゾールチオン、ピラゾリ

ン、ピラゾロン、テトラヒドロイミダゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、ヒドラゾン、アシリヒドラゾン、ポリアリールアルカン、スチルベン、ブタジエン、ベンジジン型トリフェニルアミン、スチリルアミン型トリフェニルアミン、ジアミン型トリフェニルアミン等と、それらの誘導体、およびポリビニカルバゾール、ポリシラン、導電性高分子等の高分子材料等があるが、これらに限定されるものではない。

【0042】電子注入材料としては、電子を注入する能力を持ち、発光層または発光材料に対して優れた電子注入効果を有し、発光層で生成した励起子の正孔注入層または正孔注入材料への移動を防止し、かつ薄膜形成能の優れた化合物が挙げられる。例えば、キノリン金属錯体、オキサジアゾール、ベンゾチアゾール金属錯体、ベンゾオキサゾール金属錯体、ベンゾイミダゾール金属錯体、フルオレノン、アントラキノジメタン、ジフェノキノン、チオビランジオキシド、オキサジアゾール、チアジアゾール、テトラゾール、ペリレンテトラカルボン酸、フレオレニリデンメタン、アントラキノジメタン、アントロン等とそれらの誘導体があるが、これらに限定されるものではない。また、正孔注入材料に電子受容物質を、電子注入材料に電子供与性物質を添加して増感させることもできる。

【0043】本発明により得られた有機EL素子の、温度、湿度、雰囲気等に対する安定性の向上のために、素子の表面に保護層を設けたり、シリコンオイル等を封入して素子全体を保護することも可能である。

#### 【0044】

【実施例】以下、本発明を実施例に基づきさらに詳細に説明する。本例では、電極面積2mm×2mmの有機EL素子の特性を測定した。

#### 【0045】化合物(1)の合成方法

ニトロベンゼン5g中に、9, 10-ビス(4-ブロモ

フェニル)フェナントレン1.46g、ジフェニルアミン1.52g、および炭酸カリウム3.1g、銅粉0.13gを加え、窒素雰囲気下、200°Cで50時間加熱攪拌した。放冷後、水30gで希釈し、酢酸エチルで抽出した。酢酸エチルを除き、シリカゲルを用いたカラムクロマトグラフィーにより精製し、再結晶後、昇華精製した(収量0.7g)。NMR、FD-MS、IRによって化合物の生成を確認した。

#### 【0046】実施例1

洗浄したITO電極付きガラス板上に、N, N'-(3-メチルフェニル)-N, N'-ジフェニル-1, 1-ビフェニル-4, 4-ジアミン(TPD)を真空蒸着して、膜厚20nmの正孔注入層を得た。次いで、化合物(1)を蒸着し膜厚40nmの発光層を作成し、トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム錯体(A1q3)を蒸着し、膜厚30nmの電子注入層を得た。その上に、マグネシウムと銀を10:1で混合した合金で膜厚100nmの電極を形成して有機EL素子を得た。正孔注入層および発光層は10<sup>-6</sup>Torrの真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は直流電圧5Vで発光輝度300cd/m<sup>2</sup>、最大発光輝度21000cd/m<sup>2</sup>、5Vの時の発光効率2.61m/Wの青緑色発光が得られた。次に3mA/cm<sup>2</sup>の電流密度で、この素子を連続して発光させた寿命試験の結果、初期輝度の1/2以上の発光が10000時間以上保持された。

#### 【0047】実施例2～35

発光層に、化合物(1)に換え、表2で示した化合物を使用する以外は実施例1と同様の方法で有機EL素子を作製した。この素子は表2に示す発光特性を示した。

#### 【0048】

#### 【表2】

実施例	化合物	5V発光輝度	最大発光輝度	最大発光効率
		(cd/m <sup>2</sup> )	(cd/m <sup>2</sup> )	(lm/W)
2	(2)	320	22000	2.5
3	(3)	310	23000	2.4
4	(4)	290	20000	2.2
5	(5)	260	21000	2.0
6	(6)	300	25000	2.4
7	(7)	300	26000	2.1
8	(8)	240	19000	1.8
9	(9)	340	28000	2.8
10	(10)	220	20000	1.7
11	(11)	250	22000	2.4
12	(12)	270	24000	2.7
13	(13)	280	28000	2.1
14	(14)	300	24000	2.3
15	(15)	200	19000	2.2
16	(16)	290	29000	2.9
17	(17)	230	27000	2.1
18	(18)	220	25000	2.3
19	(19)	280	23000	2.7
20	(20)	290	28000	2.5
21	(21)	290	30000	2.7
22	(22)	220	24000	2.2
23	(23)	260	28000	2.8
24	(24)	270	30000	2.6

## 【0049】

実施例	化合物	5V発光輝度	最大発光輝度	最大発光効率
		(cd/m <sup>2</sup> )	(cd/m <sup>2</sup> )	(lm/W)
25	(25)	210	17000	1.6
26	(26)	230	18000	1.6
27	(27)	190	20000	1.5
28	(28)	180	17000	1.7
29	(29)	200	16000	1.5
30	(30)	190	18000	1.7
31	(31)	280	29000	2.8
32	(32)	340	32000	2.9
33	(33)	250	26000	2.7
34	(34)	250	25000	2.4
35	(35)	320	30000	2.8

## 【0050】実施例36

洗浄したITO電極付きガラス板上に化合物(3)を真空蒸着して膜厚100nmの発光層を作成し、その上に、マグネシウムと銀を10:1で混合した合金で膜厚150nmの膜厚の電極を形成して有機EL素子を得た。発光層および陰極は、10<sup>-6</sup>Torrの真空中で基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は直流電圧5Vで発光輝度35cd/m<sup>2</sup>、最大発光輝度22000cd/m<sup>2</sup>、5V時の発光効率0.51m/Wの青緑色

発光が得られた。次に3mA/cm<sup>2</sup>の電流密度で、この素子を連続して発光させた寿命試験の結果、初期輝度の1/2以上の発光が5000時間以上保持された。

## 【0051】実施例37

洗浄したITO電極付きガラス板上に、化合物(4)を蒸着し膜厚80nmの正孔注入層を作成し、次いで、Al<sub>1</sub>q<sub>3</sub>を蒸着し、膜厚20nmの発光層を得た。その上に、マグネシウムと銀を10:1で混合した合金で膜厚100nmの電極を形成して有機EL素子を得た。正孔

注入層および発光層は  $10^{-6}$  Torr の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は直流電圧 5 V で発光輝度  $80 \text{ cd}/\text{m}^2$ 、最大発光輝度  $9000 \text{ cd}/\text{m}^2$ 、5 V の時の発光効率  $1.0 \text{ lm}/\text{W}$  の発光が得られた。次に  $3 \text{ mA}/\text{cm}^2$  の電流密度で、この素子を連続して発光させた寿命試験の結果、初期輝度の  $1/2$  以上の発光が 3000 時間以上保持された。

#### 【0052】実施例 38

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、TPD を蒸着して膜厚  $50 \text{ nm}$  の正孔注入層を作製し、次いで、Alq<sub>3</sub> を蒸着し、膜厚  $20 \text{ nm}$  の発光層を得た。化合物 (24) を蒸着し膜厚  $60 \text{ nm}$  の電子注入層を作成し、その上に、マグネシウムと銀を  $10:1$  で混合した合金で膜厚  $100 \text{ nm}$  の電極を形成して有機EL素子を得た。正孔注入層および発光層は  $10^{-6}$  Torr の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は直流電圧 5 V で発光輝度  $110 \text{ cd}/\text{m}^2$ 、最大発光輝度  $5000 \text{ cd}/\text{m}^2$ 、5 V の時の発光効率  $1.4 \text{ lm}/\text{W}$  の発光が得られた。次に  $3 \text{ mA}/\text{cm}^2$  の電流密度で、この素子を連続して発光させた寿命試験の結果、初期輝度の  $1/2$  以上の発光が 3000 時間以上保持された。

#### 【0053】実施例 39

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、TPD を真空蒸着して、膜厚  $20 \text{ nm}$  の正孔注入層を得た。次いで、N, N'-(4-メチルフェニル)-N, N'-(4-ニーブチルフェニル)-フェナントレン-9, 10-ジアミンと化合物 (2) とを  $100:1$  の重量比で蒸着し膜厚  $40 \text{ nm}$  の発光層を作成し、Alq<sub>3</sub> を蒸着し、膜厚  $10 \text{ nm}$  の電子注入層を得た。その上に、アルミニウムとリチウムを  $25:1$  で混合した合金で膜厚  $100 \text{ nm}$

の電極を形成して有機EL素子を得た。正孔注入層および発光層は  $10^{-6}$  Torr の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は直流電圧 5 V で発光輝度  $320 \text{ cd}/\text{m}^2$ 、最大発光輝度  $18000 \text{ cd}/\text{m}^2$ 、5 V の時の発光効率  $2.8 \text{ lm}/\text{W}$  の発光が得られた。次に  $3 \text{ mA}/\text{cm}^2$  の電流密度で、この素子を連続して発光させた寿命試験の結果、初期輝度の  $1/2$  以上の発光が 10000 時間以上保持された。

#### 【0054】実施例 40

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、TPD を真空蒸着して、膜厚  $20 \text{ nm}$  の正孔注入層を得た。次いで、化合物 (1) とルブレンとを  $100:1$  の重量比で蒸着し膜厚  $40 \text{ nm}$  の発光層を作成し、Alq<sub>3</sub> を蒸着し、膜厚  $10 \text{ nm}$  の電子注入層を得た。その上に、マグネシウムと銀を  $10:1$  で混合した合金で膜厚  $100 \text{ nm}$  の電極を形成して有機EL素子を得た。正孔注入層および発光層は  $10^{-6}$  Torr の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は直流電圧 5 V で発光輝度  $180 \text{ cd}/\text{m}^2$ 、最大発光輝度  $17000 \text{ cd}/\text{m}^2$ 、5 V の時の発光効率  $2.5 \text{ lm}/\text{W}$  の黄色発光が得られた。次に  $3 \text{ mA}/\text{cm}^2$  の電流密度で、この素子を連続して発光させた寿命試験の結果、初期輝度の  $1/2$  以上の発光が 10000 時間以上保持された。

#### 【0055】実施例 41～44

発光層に、ドーピング化合物として表3で示した化合物を使用する以外は実施例 40 と同様の方法で有機EL素子を作製した。この素子は表3に示す発光特性を示した。

#### 【0056】

##### 【表3】

実施例	ドーピング 化合物	5 V 発光輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	最大発光輝度	最大発光効率
			(cd/m <sup>2</sup> )	(lm/W)
4 1	ベリレン	300	31000	3.1
4 2	DCM	280	29000	2.8
4 3	キナクリドン	320	34000	3.5
4 4	クマリン	330	33000	3.1

(ただし、表中 DCM は、4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピランを、クマリンは、3-(2'-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリンを表す。)

#### 【0057】実施例 45

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、4, 4', 4"-トリス [N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ] トリフェニルアミンを真空蒸着して、膜厚  $40 \text{ nm}$  の正孔注入層を得た。次いで、4, 4'-ビス [N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ] ビフェニル ( $\alpha$ -NPD) を真空蒸着して、膜厚  $10 \text{ nm}$  の第二正孔注入層を得た。さらに、化合物 (1) を真空蒸着して、膜厚  $30 \text{ nm}$  の発光層を作成し、さらにビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナト)(1-フェノラート)ガリウム錯体を真空蒸着して膜厚  $30 \text{ nm}$  の電子注

入層を作成し、その上に、マグネシウムと銀を  $10:1$  で混合した合金で膜厚  $150 \text{ nm}$  の電極を形成して、有機EL素子を得た。正孔注入層および発光層は  $10^{-6}$  Torr の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は、直流電圧 5 V で発光輝度  $330 \text{ cd}/\text{m}^2$ 、最大発光輝度  $26000 \text{ cd}/\text{m}^2$ 、発光効率  $3.2 \text{ lm}/\text{W}$  の青緑色発光が得られた。

#### 【0058】実施例 46～79

発光層に、化合物 (1) に換え、表4で示した化合物を使用する以外は実施例 45 と同様の方法で有機EL素子を作製した。この素子は表4に示す発光特性を示した。

【0059】

【表4】

実施例	化合物	5V発光輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	最大発光輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	最大発光効率 (lm/W)
46	(2)	340	30000	3.1
47	(3)	320	29000	2.7
48	(4)	330	28000	2.6
49	(5)	260	27000	2.5
50	(6)	350	31000	3.3
51	(7)	340	34000	3.4
52	(8)	260	22000	2.1
53	(9)	360	32000	3.0
54	(10)	250	29000	2.5
55	(11)	250	28000	2.7
56	(12)	310	28000	2.6
57	(13)	330	32000	3.3
58	(14)	350	36000	3.6
59	(15)	230	26000	2.2
60	(16)	340	35000	3.6
61	(17)	280	32000	3.5
62	(18)	290	31000	3.3
63	(19)	340	31000	3.7
64	(20)	320	33000	3.4
65	(21)	360	32000	3.4
66	(22)	240	23000	2.8
67	(23)	260	27000	2.8
68	(24)	290	31000	3.0

【0060】

実施例	化合物	5V発光輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	最大発光輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	最大発光効率 (lm/W)
69	(25)	250	20000	2.1
70	(26)	280	24000	2.3
71	(27)	220	23000	2.0
72	(28)	200	19000	1.9
73	(29)	240	21000	2.3
74	(30)	240	24000	2.4
75	(31)	320	32000	3.1
76	(32)	360	35000	3.3
77	(33)	290	29000	2.8
78	(34)	320	28000	3.0
79	(35)	340	33000	3.4

【0061】実施例80

洗浄したITO電極付きガラス板上に、化合物(9)、トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム錯体、TPD、ポリカーボネート樹脂(PC-A)を3:2:3:8の重量比でテトラヒドロフランに溶解させ、スピノコーティング法により膜厚100nmの発光層を得た。その上に、マグネシウムと銀を10:1で混合した合金で膜厚150nmの電極を形成し有機EL素子を得た。

た。この素子は直流電圧5Vで発光輝度12cd/m<sup>2</sup>、最大発光輝度3100cd/m<sup>2</sup>、5Vの時の発光効率0.51m/Wの発光が得られた。次に3mA/cm<sup>2</sup>の電流密度で、この素子を連続して発光させた寿命試験の結果、初期輝度の1/2以上の発光が3000時間以上保持された。

【0062】本発明の有機EL素子は発光効率、発光輝度の向上と長寿命化を達成するものであり、併せて使用

される発光材料、ドーピング材料、正孔注入材料、電子注入材料、増感剤、樹脂、電極材料等および素子作製方法を限定するものではない。

【0063】

【発明の効果】本発明により、従来に比べて高発光効率、高輝度であり、長寿命の有機EL素子を得ることができた。

THIS PAGE BLANK <sup>1857</sup>